

УДК 530.182+535-14

О ГЕНЕРАЦИИ ТЕРАГЕРЦОВОГО ИЗЛУЧЕНИЯ В РЕЖИМЕ САМОИНДУЦИРОВАННОЙ ПРОЗРАЧНОСТИ В СИСТЕМЕ ПРИМЕСЕЙ, ОБЛАДАЮЩИХ ПОСТОЯННЫМ ДИПОЛЬНЫМ МОМЕНТОМ

А.Н. Бугай, С.В. Сазонов

Аннотация

Рассмотрен резонансный механизм генерации терагерцового излучения, основанный на взаимодействии лазерного импульса с двухуровневыми квантовыми частицами, обладающими постоянным дипольным моментом. В случае, когда постоянный дипольный момент превосходит по величине дипольный момент перехода, резонансный механизм превосходит по эффективности нерезонансное оптическое выпрямление.

Ключевые слова: терагерцовое излучение, самоиндуцированная прозрачность, постоянный дипольный момент.

Введение

Развитие методов генерации излучения терагерцового диапазона частот в последнее время происходит весьма интенсивно. Не в последнюю очередь это связано с нуждами растущего числа приложений, требующих источников интенсивного широкополосного излучения в субмиллиметровом диапазоне [1]. Большинство лазерных методов генерации терагерцового излучения без участия движения свободных носителей заряда является нерезонансными [2]. В качестве примера можно привести широко распространенный метод оптического выпрямления, основанный на генерации терагерцового излучения как разности крайних частот спектра фемтосекундного лазерного импульса в квадратично-нелинейном кристалле. Условием эффективного протекания данного процесса является равенство групповой скорости лазерного импульса и фазовой скорости терагерцового сигнала.

Явление самоиндуцированной прозрачности [3] является одним из наиболее хорошо изученных резонансных эффектов взаимодействия оптических импульсов с двухуровневой квантовой системой. В анизотропном случае, когда отсутствует симметрия относительно пространственной инверсии, диагональные матричные элементы оператора дипольного момента отличны от нуля. В этих условиях соответствующие частицы (полярные молекулы, несимметричные квантовые ямы и т. п.) обладают постоянным дипольным моментом, находясь в собственнo-энергетических состояниях. Оптический импульс здесь вызывает не только квантовые переходы между уровнями, но и динамически сдвигает их частоту за счет эффекта Штарка.

Резонансное взаимодействие импульсов с такими анизотропными частицами в последние годы интенсивно исследовалось как с теоретической стороны на предмет интегрируемости и наличия солитонных режимов распространения [4, 5], так и с прикладной, например, для осуществления генерации второй гармоники [6].

В настоящей работе рассмотрена возможность генерации терагерцового излучения за счет резонансного взаимодействия фемтосекундного лазерного импульса в среде с примесными центрами, обладающими постоянным дипольным моментом. В качестве основной среды рассмотрен квадратично-нелинейный кристалл, в котором возможна генерация по нерезонансному механизму оптического выпрямления. Таким образом, возможно изучение одновременного конкурирующего действия обоих механизмов (резонансного и нерезонансного) на процесс генерации терагерцовых импульсов.

1. Модельные уравнения

Пусть на входе лазерный импульс поляризован в плоскости необыкновенной волны, а его распространение происходит вдоль оси z в плоскости, перпендикулярной к оптической оси одноосного кристалла. При такой геометрии в кристалле будет присутствовать только необыкновенная волна. Волновое уравнение для импульсного поля E примет вид

$$\frac{\partial^2 E}{\partial z^2} - \frac{1}{c^2} \frac{\partial^2 E}{\partial t^2} = \frac{4\pi}{c^2} \frac{\partial^2 P}{\partial t^2}, \quad (1)$$

где c – скорость света в вакууме, P – поляризационный отклик среды.

Представим электрическое поле импульса в виде суммы его оптической E_o и терагерцовой E_T компонент:

$$E = E_o + E_T. \quad (2)$$

Поляризационный отклик включает в себя четыре основные составляющие:

$$P = P_o + P_T + P_{nl} + P_R. \quad (3)$$

где P_o и P_T – линейные части нерезонансных поляризационных откликов в оптическом и терагерцовом диапазонах частот соответственно, P_{nl} – часть нерезонансного поляризационного отклика, соответствующая квадратичной нелинейности, а P_R отвечает за резонансное взаимодействие с двухуровневой системой.

Линейную восприимчивость в области оптической прозрачности можно с хорошей точностью представить в виде

$$\chi_o(\omega) = \chi + \frac{\alpha\omega^2}{2\pi} + \frac{\beta\omega^4}{2\pi} - \frac{\delta}{2\pi\omega^2}, \quad (4)$$

где χ – безынерционная часть оптической восприимчивости; α , β , δ – эмпирические константы.

Аналогично запишем выражение для терагерцовой восприимчивости вне области поглощения;

$$\chi_T(\Omega) = \chi_t - i \frac{\gamma\Omega}{4\pi} + \frac{g\Omega^2}{4\pi}. \quad (5)$$

Здесь χ_t – безынерционная часть восприимчивости на терагерцовых частотах; γ и g – эмпирические константы.

Соответствующие выражения для поляризации во временной области легко получить согласно известному правилу $\omega, \Omega \rightarrow -i\partial/\partial t$.

Оптический импульс, содержащий достаточно много колебаний, обладает хорошо выраженными несущей частотой ω , волновым числом k и огибающей ψ , так что можно записать:

$$E_o = \psi(z, t)e^{i(\omega t - kz)} + \text{к.с.} \quad (6)$$

Нерезонансную часть нелинейной поляризации представим в виде

$$P_{nl} = 2\chi_2(\omega, -\omega)|\psi|^2 + \chi_2(0, 0)E_T^2 + 2\chi_2(\omega, 0)[E_T\psi e^{i(\omega t - kz)} + \text{к.с.}], \quad (7)$$

где $\chi_2(\omega, -\omega)$, $\chi_2(0, 0)$, $\chi_2(\omega, 0)$ – соответствующие частотные компоненты тензора нелинейной восприимчивости второго порядка. Здесь и далее мы пренебрегаем эффектом генерации второй гармоники ввиду того, что соответствующий синхронизм не выполняется.

Резонансная часть поляризационного отклика P_R , описывающая взаимодействие с двухуровневой системой, имеет вид

$$P_R = Nd_{12}(\rho_{12} + \rho_{21}) + Nd_{11}\rho_{11} + Nd_{22}\rho_{22}, \quad (8)$$

где N – концентрация примесей, d_{ij} и ρ_{ij} – соответствующие элементы операторов дипольного момента и матрицы плотности.

Для оптического импульса и поляризационного отклика на соответствующих частотах воспользуемся приближением медленно меняющихся огибающих. В этих условиях, пренебрегая быстро осциллирующими слагаемыми, волновое уравнение можно расщепить на две части, соответствующие оптическим и терагерцовым (близким к нулевым) частотам. Кроме того, для поля терагерцового сигнала применим приближение квазиоднонаправленного распространения [7].

Система нелинейных волновых уравнений, описывающая динамику импульсов и состояние среды, примет вид:

$$i \left(\frac{\partial \psi}{\partial t} + (v_g - v_T) \frac{\partial \psi}{\partial \zeta} \right) - bE_T\psi + \frac{\omega_2}{2} \frac{\partial^2 \psi}{\partial \zeta^2} - q\omega R = 0, \quad (9)$$

$$\frac{\partial E_T}{\partial t} - \eta \frac{\partial^2 E_T}{\partial \zeta^2} + \sigma \frac{\partial^3 E_T}{\partial \zeta^3} - b_T \frac{\partial}{\partial \zeta} |\psi|^2 + qv_T \frac{D}{d} \frac{\partial}{\partial \zeta} W = 0. \quad (10)$$

$$\frac{\partial R}{\partial t} - v_T \frac{\partial R}{\partial \zeta} = i \left(\Delta + \frac{DE_T}{\hbar} \right) R + i \frac{2d\psi W}{\hbar}, \quad (11)$$

$$\frac{\partial W}{\partial t} - v_T \frac{\partial W}{\partial \zeta} = \frac{id}{\hbar} (\psi^* R - \psi R^*), \quad (12)$$

Здесь $\zeta = z - v_T t$; $q = 2\pi N d n_g / n_0$; v_T – линейная скорость терагерцового импульса; v_g , n_g и $\omega_2 = -\partial^2 \omega / \partial k^2$ – групповая скорость, групповой показатель преломления и коэффициент дисперсии групповой скорости (ДГС) оптического импульса в случае отсутствия примесей, определяемые законом дисперсии $k(\omega) = n_0 \omega (1 + \alpha \omega^2 + \beta \omega^4 - \delta \omega^{-2}) / c$, где $n_0 = \sqrt{1 + 4\pi \chi_e}$. Постоянные $\eta = \gamma v_T^2 / 2$, $\sigma = g v_T^3 / 2$ задают поглощение и дисперсию в терагерцовом диапазоне, а коэффициенты $b = 4\pi \chi_2(\omega, 0) \omega n_g / n_0$, $b_T = 4\pi \chi_2(\omega, -\omega) v_g$ описывают нелинейное взаимодействие между обеими компонентами.

В уравнениях Блоха (11), (12) $R = \rho_{12} \exp[i(\omega t - kz)]$, $W = \rho_{22} - \rho_{11}$ – инверсия населенностей, $\Delta = \omega_0 - \omega$ – отстройка от резонанса, а также введены обозначения $d_{12} \equiv d$, $D = d_{11} - d_{22}$, где D – постоянный дипольный момент. Кроме того учтено, что длительность импульса намного меньше всех характерных времен релаксации. Неоднородным уширением пренебрегаем.

В условиях самоиндуцированной прозрачности форма импульса сохраняется при распространении, а его групповая скорость испытывает замедление. Таким образом, условие синхронизма для генерации терагерцового излучения можно записать в виде

$$v_g / (1 + q\tau_p^2 / (\Delta^2 \tau_p^2 + 1)) = v_{ph}, \quad (13)$$

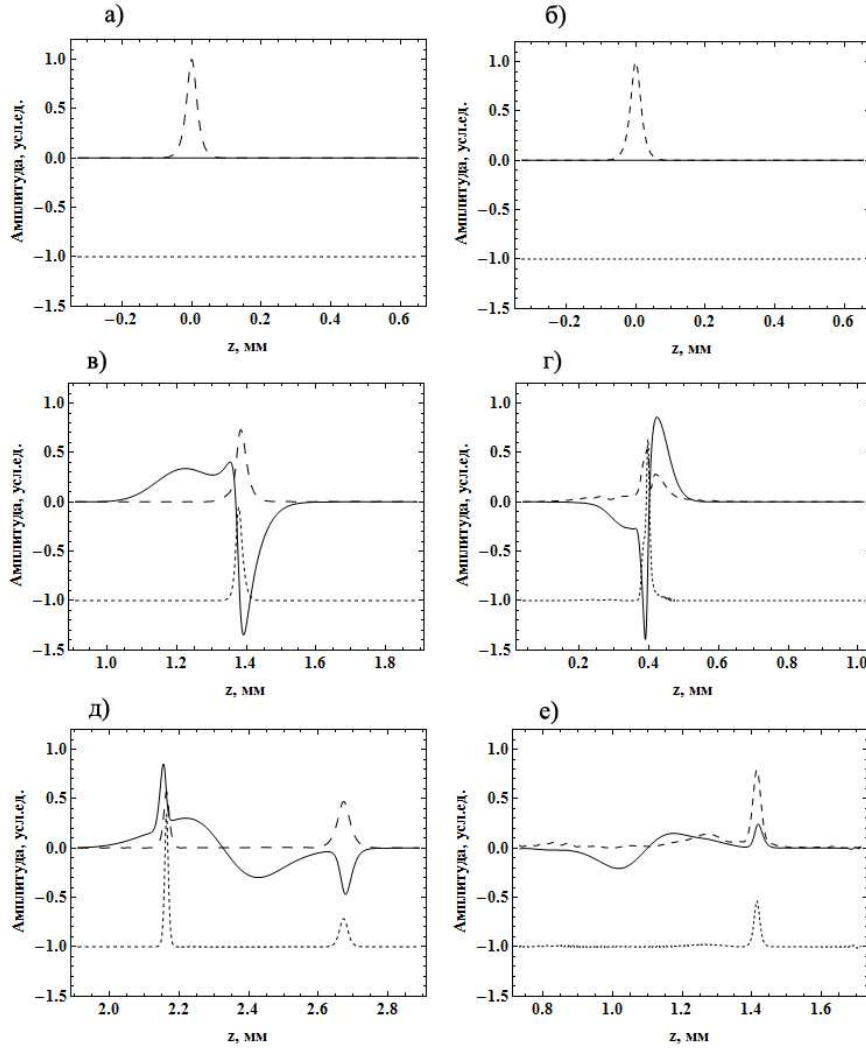


Рис. 1. Пространственно-временная эволюция модуля огибающей оптического импульса, поля терагерцового импульса и инверсии населенностей (штриховая, сплошная и пунктирная линии) в случаях $D = 0$ (а, в, д), $D = 10d$ (б, г, е). Амплитуды ψ и E_T нормированы на начальную величину поля импульса накачки в соотношении 1:1 для оптического импульса и 1:100 (а, в, д), 1:30 (б, г, е) для терагерцового импульса

где τ_p – длительность импульса, v_{ph} – фазовая скорость терагерцового сигнала на заданной частоте. Таким образом, за счет замедления групповой скорости лазерного импульса синхронизм может быть достигнут и в кристаллах, где $v_g > v_{ph}$. Отметим также, что перестройка терагерцовой частоты может осуществляться путем изменения длительности лазерного импульса.

2. Результаты численного моделирования

Для дальнейшего исследования воспользуемся численным моделированием системы (9)–(12). Для простоты полагаем, что система квантовых уровней примесей находится в основном состоянии до подачи импульса. В качестве среды рассмотрим

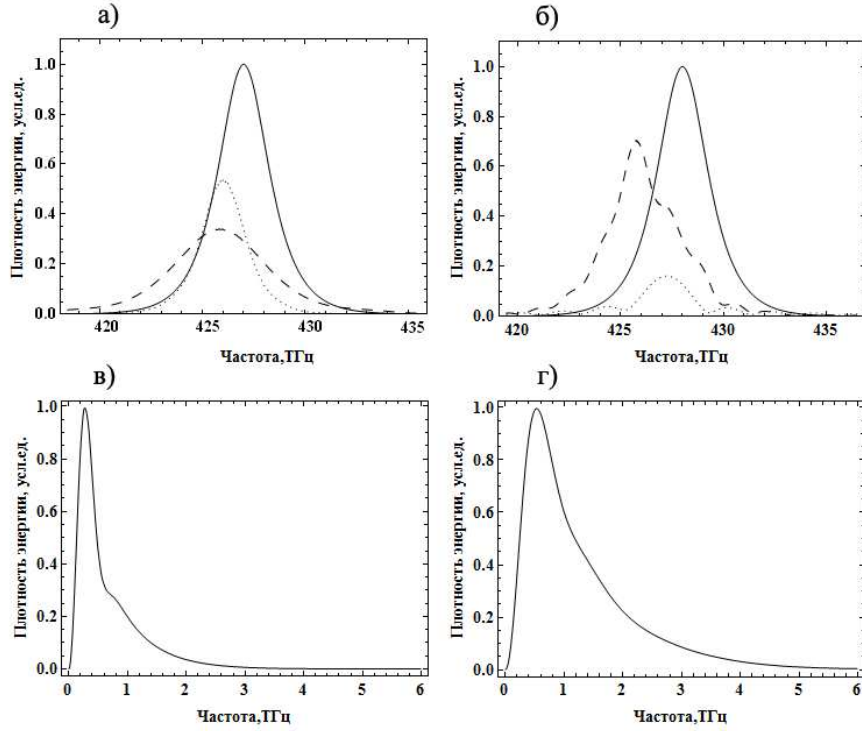


Рис. 2. Красный сдвиг спектров оптического импульса на асимптотической стадии генерации в случаях $D = 0$ (а), $D = 10d$ (б) (сплошная линия – спектр на входе в среду, штриховая и пунктирная линии соответствуют резонансному и нерезонансному импульсу). Спектр терагерцового импульса на переходной стадии генерации в случаях $D = 0$ (в), $D = 10d$ (г)

ниобат лития, обладающий достаточно большой нерезонансной нелинейностью. Здесь [8] $\alpha = 1.61 \cdot 10^{-33} \text{ с}^2$, $\beta = 2.5 \cdot 10^{-65} \text{ с}^4$, $\delta = 4.88 \cdot 10^{27} \text{ с}^{-2}$, $n_0 = 2.13$. В терагерцовом диапазоне имеем: $n_T = 5.099$, $\gamma = 1.1 \cdot 10^{-13} \text{ с}$, $g = 7.3 \cdot 10^{-27} \text{ с}^2$. Таким образом, $v_g/v_{ph} \sim 2$. Величины нелинейных восприимчивостей: $\chi_2(\omega, 0) = 6.78 \cdot 10^{-8} \text{ СГСЭ}$, $\chi_2(\omega, -\omega) = 3.34 \cdot 10^{-7} \text{ СГСЭ}$.

Пусть оптический импульс имеет энергию 60 мкДж, длительность 100 фс и длину волны 700 нм. Считая поперечный диаметр равным 1 мм и предполагая, что поперечное распределение интенсивности имеет гауссов профиль, а временное – вид гиперболического секанса, найдем, что пиковая интенсивность равна 26 ГВт/см^2 . При указанных длительностях данная величина не превосходит предела для оптического пробоя в ниобате лития. Пусть недиагональные дипольные момент резонансных переходов равны $d = 10^{-18} \text{ СГСЭ}$. Тогда временная площадь импульса составит в точности 2π . При концентрации примесных атомов $N = 3.3 \cdot 10^{18} \text{ см}^{-3}$ условие (13) выполняется для частоты 1 ТГц. В качестве примесей наиболее привлекательны для использования наноструктуры, например нанокристаллы [9], преимуществами которых являются зависимость их оптических свойств от размера и геометрии. В связи с этим величина постоянного дипольного момента D может быть как больше, так и меньше d [6].

Рассмотрим влияние постоянного дипольного момента на процесс генерации. В общем случае в процессе эволюции (рис. 1) можно выделить две стадии: переходную и асимптотическую. На переходной стадии происходит генерация терагер-

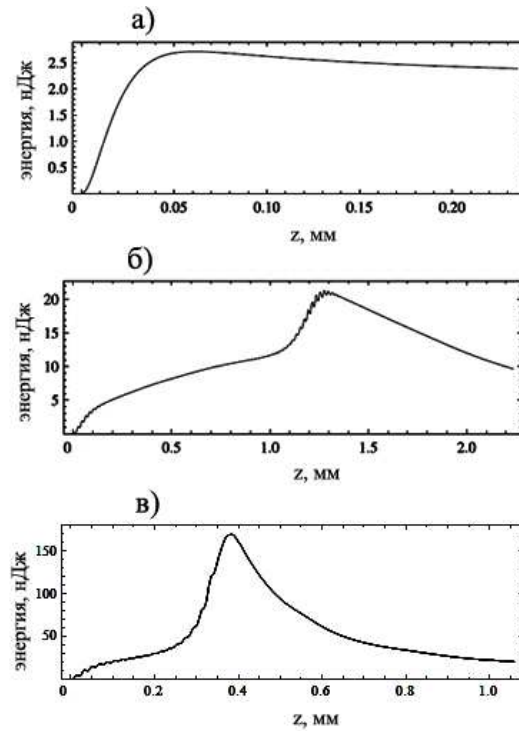


Рис. 3. Энергия генерируемого терагерцового излучения в зависимости от пробега в среде в случае: а) чистого кристалла, б) кристалла, содержащего примеси с $D = 0$, в) кристалла, содержащего примеси с $D = 10d$

цового излучения в виде биполярного сигнала (рис. 1, в, г). В рассмотренном случае знаки нерезонансной квадратичной нелинейности и D выбраны таким образом, что соответствующие механизмы дают сигналы противоположной полярности. Как показывают вычисления, нерезонансный механизм доминирует при $D/d < 2$, в то время как при достижении указанного предела эффективность генерации уменьшается до нуля, а затем начинает доминировать резонансный механизм. Знак поля терагерцового импульса при этом заменяется на противоположный. Отметим, что резонансный механизм позволяет получить большую эффективность преобразования, которая растет с увеличением отношения D/d .

С началом переходной стадии (рис. 1, д, е) эффективность генерации достигает некоторого предела, а затем постепенно уменьшается. Здесь происходит разделение оптического импульса на две части, одна из которых находится в резонансе с системой примесей, а вторая незначительно выходит из него. Образовавшиеся импульсы захватывают части терагерцового сигнала в виде однополярных импульсов, в дальнейшем распространяясь с ними синхронно. Данные объекты могут быть отождествлены с длинно-коротковолновыми солитонами самоиндуцированной прозрачности, рассматривавшимися в работе [5]. Отметим, что резонансный импульс при $D \neq 0$ имеет гораздо меньшую амплитуду, чем нерезонансный (рис. 1, е), что связано с более эффективной перекачкой энергии в терагерцовый диапазон.

Спектр оптического импульса в процессе генерации испытывает непрерывное смещение в красную область (рис. 2, а, б), достигающее насыщения с образованием солитонов. Описанный эффект приводит к выводу системы из резонанса с примесными центрами и уменьшению эффективности генерации за счет нарушения

синхронизма. Данный процесс можно подавить, задавая на входе небольшую отрицательную отстройку от резонанса. Таким образом, в результате красного смещения несущая частота импульса войдет в резонанс. Спектр терагерцового сигнала также деформируется, смещаясь в область более низких частот. Это связано как с поглощением в кристалле, так и с деформацией оптической накачки. Отметим, что резонансный механизм генерации дает более широкий терагерцовый спектр (рис. 2, в, г).

На рис. 3 приведены энергетические эффективности генерации. В случае отсутствия резонансных примесей энергия терагерцовых импульсов невелика по причине отсутствия синхронизма в коллинеарном режиме. При наличии примесных центров, не обладающих постоянным дипольным моментом ($D = 0$), эффективность преобразования повышается, становясь сравнимой с достигаемой при использовании импульсов с наклонными фронтами [10]. Наконец, при $D/d = 10$ эффективность возрастает еще почти на порядок. Таким образом, при наличии сильной анизотропии квантовых частиц можно достичь значительного повышения энергетической эффективности генерации терагерцового излучения.

Заключение

В настоящей работе рассмотрен резонансный метод генерации терагерцового излучения в режиме самоиндуцированной прозрачности на системе примесей, обладающих постоянным дипольным моментом. В режиме самоиндуцированной прозрачности также можно достичь синхронизма вследствие замедления групповой скорости лазерного импульса до фазовой скорости терагерцового излучения. При достаточно высокой степени анизотропии, что выражается отношением D/d , резонансный механизм генерации более эффективен, чем нерезонансный механизм оптического выпрямления. Для повышения эффективности генерации необходимо подавать входной импульс с небольшой (порядка доли процента) отрицательной относительной отстройкой от резонанса. В процессе генерации можно выделить две стадии: переходную и асимптотическую. В ходе последней возможно образование формирования оптико-терагерцовых солитонов.

В качестве примесей весьма перспективно использовать несимметричные наноструктуры, такие, как нанокристаллы. Их преимуществом является большая величина дипольных моментов переходов, а также возможность регулировать оптические свойства подбором формы и геометрии. Так как основным параметром, позволяющим регулировать частоту получаемого терагерцового сигнала, является не частота импульса накачки, а его временная длительность, то выбор частоты двухуровневых переходов в примесных атомах может быть достаточно произволен.

Работа выполнена при финансовой поддержке РФФИ (проект № 09-02-00503-а) и Фонда «Династия».

Summary

A.N. Bugay, S.V. Sazonov. On Generation of Terahertz Radiation in the Self-Induced Transparency Regime in a System of Impurities with a Permanent Dipole Moment.

The article deals with the resonant mechanism of the generation of terahertz radiation based on the interaction between a laser pulse and two-level quantum particles with a permanent dipole moment. In the case when the permanent dipole moment exceeds the transition dipole moment, the resonant mechanism is more efficient compared to the nonresonant optical rectification.

Key words: terahertz radiation, self-induced transparency, permanent dipole moment.

Литература

1. *Siegel P.H.* Terahertz technology // IEEE Trans. Microwave Theory Tech. – 2002. – V. 50, No 3. – P. 910–928.
2. *Kitaeva G.Kh.* Terahertz generation by means of optical lasers // Laser Phys. Lett. – 2008. – V. 5, No 8. – P. 559–576.
3. *McCall S.L., Hahn E.L.* Self-induced transparency // Phys. Rev. – 1969. – V. 183, No 2. – P. 457–489.
4. *Agrotis M., Ercolani N.M., Glasgow S.A., Moloney J.V.* Complete integrability of the reduced Maxwell–Bloch equations with permanent dipole // Physica D. – 2000. – V. 138, No 2. – P. 134–162.
5. *Сазонов С.В., Устинов Н.В.* Режимы резонансной прозрачности в условиях синхронизма длинных и коротких волн // ЖЭТФ. – 2005. – Т. 127, № 2. – С. 289–307.
6. *Kočinac M., Ikonić Z., Milanović V.* The influence of permanent dipole moments on second harmonic generation in asymmetric semiconductor quantum wells // Optics Commun. – 1997. – V. 140. – P. 89–92.
7. *Caudrey P.J., Eilbeck J.C., Gibbon J.D., Bullough R.K.* Exact multisoliton solution of inhomogeneously broadened self-induced transparency equations // J. Phys. A.: Math. Nucl. Gen. – 1973. – V. 6. – P. L53–L56.
8. *Nikogosyan D.N.* Nonlinear Optical Crystals: A Complete Survey. – N. Y.: Springer, 2005. – 427 p.
9. *Li Liang-shi, Alivisatos A.P.* Origin and Scaling of the Permanent Dipole Moment in CdSe Nanorods // Phys. Rev. Lett. – 2003. – V. 90, No 9. – P. 097402-1–097402-4.
10. *Stepanov A.G., Kuhl J., Kozma I.Z., Riedle E., Almási G., Hebling J.* Scaling up the energy of THz pulses created by optical rectification // Opt. Expr. – 2005. – V. 13, No 15. – P. 5762–5768.

Поступила в редакцию
01.02.10

Бугай Александр Николаевич – кандидат физико-математических наук, научный сотрудник Объединенного института ядерных исследований, г. Дубна.

E-mail: bugay_aleksandr@mail.ru

Сазонов Сергей Владимирович – доктор физико-математических наук, ведущий научный сотрудник Российского научного центра «Курчатовский институт»; профессор Московского авиационного института (государственного технического университета), г. Москва.

E-mail: sazonov.sergey@gmail.com